M thod for joining m mbers at ordinary t mp rature						
Patent Number:	□ US5967402					
Publication date:	1999-10-19					
Inventor(s):	KUWABARA MITSUO (JP)					
Applicant(s):	HONDA MOTOR CO LTD (JP)					
Requested Patent:	□ JP10263849					
Application Number:	: US19980039446 19980316					
Priority Number(s):	JP19970072084 19970325					
IPC Classification:	B23K20/00; B23K20/22; B23K20/233					
EC Classification:	B23K28/00					
Equivalents:	CA2232647					
Abstract						
When a metal member and a ceramic member are joined to one another, an aluminum nitride sintered compact is prepared. A liquid and a component which is mutually reactive with the liquid are applied onto the aluminum nitride sintered compact, and then a copper foil is laminated thereon. Subsequently, when the members are left to stand at room temperature, the liquid and the component mutually cause an exothermic reaction. The aluminum nitride sintered compact and the copper foil mutually diffuse, and they are tightly joined to one another. Accordingly, the members to be joined are not thermally affected, and a desired joining strength can be obtained by using simple equipment.						
Data supplied from the esp@cenet database - I2						



(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平10-263849

(43)公開日 平成10年(1998)10月6日

(51) Int.Cl.⁶

B 2 3 K 20/00

識別配号

310

FΙ

B 2 3 K 20/00

310M

審査請求 未請求 請求項の数3 OL (全 6 頁)

(21)出願番号

特願平9-72084

(22)出顧日

平成9年(1997)3月25日

(71)出顧人 000005326

本田技研工業株式会社

東京都港区南青山二丁目1番1号

(72)発明者 桑原 光雄

埼玉県狭山市新狭山1-10-1 ホンダエ

ンジニアリング株式会社内

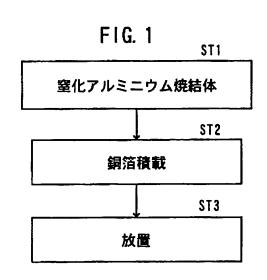
(74)代理人 弁理士 千葉 剛宏 (外1名)

(54) 【発明の名称】 部材の常温接合方法

(57)【要約】

【課題】接合される部材に熱的影響が生ずることがなく、しかも簡単な設備で所望の接合強度を得ることができる。

【解決手段】金属とセラミックスの接合において、窒化アルミニウム焼結体を用意し、この窒化アルミニウム焼結体の上に液体およびこの液体と相互に反応する成分とが塗布された後、銅箔が積層される。次いで、室温中に放置することにより、液体と成分が相互に発熱反応を起こし、窒化アルミニウム焼結体と銅箔とが相互拡散して強固に接合される。



【特許請求の範囲】

【請求項1】水、エタノール等のアルコール類、メチルアミン等のアミン類、カルバミン酸等の有機酸類、または酢酸エチル等のエステル類から選択される少なくとも一種の液体と、前記液体が所定量以下になる際に相互に反応する成分とを、第1部材と第2部材との間に配する工程と、

100℃以下の温度にて前記液体を前記所定量以下にすることにより、該液体と前記成分とが相互に反応し、前記第1部材と前記第2部材とが相互拡散して一体的に接合する工程と、

を有することを特徴とする部材の常温接合方法。

【請求項2】請求項1記載の方法において、前記成分は、リチウム、マグネシウム、アルミニウム、チタン、ジルコニウム、ハフニウム、バナジウム、クロム、またはランタンを含むセリウム、ネオジム、サマリウムおよびジスプロシウム等のランタノイド元素から選択される少なくとも一種の元素であることを特徴とする部材の常温接合方法。

【請求項3】請求項2記載の方法において、前記成分の他に、モリブデン、タングステン、コバルト、ニッケル、鉄、銅または銀から選択される少なくとも一種の元素が添加されることを特徴とする部材の常温接合方法。

【発明の詳細な説明】

[0001]

【発明の属する技術分野】本発明は、第1部材と第2部 材とを常温下で互いに接合するための部材の常温接合方 法に関する。

[0002]

【従来の技術】通常、金属部材と金属部材とを接合する際、あるいは金属部材とセラミックス部材とを接合する際に、ろう材を用いるろう付け法、拡散ろう付け法、摩擦圧接法、あるいはミグやスポット等の各種溶接法が広く採用されている。

【0003】この場合、上記のろう付け法では、接合される部材間にろう材を配置し、バーナー等により局部加熱を行って前記ろう材をその融点以上に加熱することにより、接合を行うようにしている。しかしながら、部材相互の成分の拡散が少なく、接合強度が低いという問題がある。

【0004】また、上記の拡散ろう付け法では、接合母材である部材が高温に加熱されるため、部材相互で成分の拡散が生じてろう付けよりも高い接合強度が得られるものの、焼き鈍りや熱歪みの他、変形が発生するという問題がある。さらに、各種溶接法では、接合する金属を溶融させるため、単位面積当たりの接合強度が高くなるものの、接合部の変形も大きくなるという問題がある。【0005】このように、上記の各接合法では、接合しようとする金属あるいはセラミックスを高温に曝すため、その歪みヒステリシスが常温時において残存してし

まい、熱歪みが発生することが知られている。また、部分加熱によっても歪みが発生し、疲労特性に影響を与える等、加熱による種々の弊害が惹起されている。

【0006】そこで、熱歪みの発生を回避するために、常温乃至その近傍で接合を行う接合法として、摩擦圧接法が採用されている。この摩擦圧接法では、接合する部材双方の原子が直接拡散して非常に高い強度が得られるとともに、歪みの発生を有効に低減することができる。【0007】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記の 摩擦圧接法では、部材同士の接合部に多くのバリが発生 するため、次工程で前記バリを除去しなければならな い。これにより、バリ除去用の特別な設備が必要になる とともに、接合可能な部材の大きさが限定されるという 問題が指摘されている。

【0008】本発明は、この種の問題を解決するものであり、接合される部材に熱的影響が生ずることがなく、しかも簡単な設備で所望の接合強度を得ることができる信頼性の高い部材の常温接合方法を提供することを目的とする。

[0009]

【課題を解決するための手段】前記の課題を解決するために、本発明に係る部材の常温接合方法では、先ず、接合しようとする金属同士あるいは金属とセラミックスの間に、ある特定の液体と、この液体が所定の臨界点以下となる際に相互に反応する成分とが配置される。この成分は、セラミックスや金属の粉末、ペーストあるいは板状の形態で用いられる。

【0010】この段階では、液分の揮散によって偶発的に反応が開始される場合があり、この反応を制御するために各種の添加剤が用いられる。すなわち、選択した液体と反応成分は反応度が高く、保存中に徐々に反応して液体成分が減少したり、また、その反応により反応物が生成したりする。これにより、反応させたいとき、すなわち、実際接合を行う際に、反応成分や反応種の欠如や欠落が生じてしまう。

【0011】従って、反応種である液体成分と反応成分とは、保存時に互いに隔離する必要があり、その手法として液体成分のカプセル化が採用されている。カプセル化することにより、反応種である液体成分と反応成分との接点が少なくなるからである。

【0012】液体は、その量が減少していくと表面張力で球状になる性質を有しており、予め添加剤を均一に分散しておき、液体量を減ずることによってその液体の表面に保護膜を形成させてカプセル化を図るものである。カプセルは、加圧や加温等の外部からの作用によって容易に破壊され、その内部に封入された反応種の液体成分が反応成分と接触して反応が発生することが望ましい。反応開始点が多い程、反応の着火源が多く存在することになり、急激な発熱反応が生起継続することによって、

接合可能なエネルギが得られるからである。

【0013】このカプセル化は、完全になされるものではなく、保護膜の割れ目や若干の露出部分があり、ここから液分が蒸発できるように構成されている。このため、破れ目等が表面張力の元である液体の表面エネルギと比べて小さいときは、保存中の反応は生じず、わずかな外力によってその均衡が破れ、液体が漏れて反応を急激に開始することができ、有利である。なお、カプセル化するための添加剤の量を多くすると、液体を臨界点以下にする際のエネルギが大きくなってしまい、常温乃至その近傍で反応させることができなくなる。

【0014】液体は、水を始めとして、エタノール等の アルコール類、アミン類、またはエステル類等の種々の ものが採用される。液体の選択にあたっては、接合しよ うとする金属やこの液体と反応させる金属に基づいて行 われるが、具体的には、酸化を促進させたい、酸化を抑 制した状態で接合したい等の要求特性から決められる。 【0015】添加剤は、通常、セラミックスや金属粉末 の分散剤やバインダー等として用いられるものでよい。 但し、バインダーの添加量は、上記の粉末の成形時に比 べて1/10程度の量に設定する必要がある。バインダ 一の添加量が多いと、液体の表面張力が抑制されて接着 剤等で用いられる展開剤に近似する作用を有してしま う。これにより、液体が均一乾燥してしまい、この液体 のカプセル化が困難になるとともに、カプセル化したと してもそのカプセルの被膜強度が高すぎて、該カプセル を壊して反応させるために要するエネルギが大きくなっ てしまう。これにより、常温乃至その近傍でも接合処理 ができなくなってしまう。

【0016】一方、粉末の分散時に用いられる分散剤的機能を有する添加剤は、セラミックスや金属の成形用として通常用いられる量の2~3倍以上の量に設定する。これは、液体のカプセル化を図るために、表面張力を上げてあたかもシャボン玉のような状態を形成する必要があり、従来の量的範囲を超える範囲に設定する必要があるからである。

【0017】上記のようにカプセル化された反応性液体は、この液体と相互に激しく発熱反応するような成分とともに接合しようとする部材間に挟持される。この成分は、セラミックス、金属および有機金属に大別され、これらの選択は、接合の種類等により適宜行われる。成分としてセラミックスを用いた場合、接合部乃至その近傍がセラミックス分散による複合材として構成され、大きな強度が得られる。成分として金属を用いた場合、セラミックスと金属の2つの形態があり、一方、有機金属を用いた場合、金属として構成される。

【0018】この種の成分は、粉状、液体状、または板状の形態として用いられ、その選択は、得られる特性を考慮してなされる。例えば、液体と反応する成分が液体であると、接合する直前で双方をよく混合して接合しよ

うとする両方の金属に薄く塗布した後、前記金属同士を 合わせる。そのため、金属同士の間では、液分量が減少 していき、液体の臨界点以下になると両液体が直ちに激 しく発熱反応し、金属双方の接合部分の温度が急激に上 昇する。その際、液体の成分は、部分的に金属内部に拡 散するとともに、両金属自体が相互に拡散して接合処理 が遂行される。

【0019】ここで、接合の信頼性を高めるために、金属を、例えば、10~100MPaの加圧力で加圧してもよい。この加圧によって、接合部に発生し易いボイドが抑制され、反応の基体間距離の減少や熱伝達効率の向上が図られ、良好な接合状態が得られる。なお、塑性変形と同時に接合して形状付与を行う場合には、加圧力が100MPa以上であってもよい。

【0020】液体と反応する成分として液体を用いる場合には、ニトロセルロースやポリ酢酸ビニル等を粘着剤として用いてもよい。これにより、反応量を大きくすることが可能になり、大きな発熱量を得ることができる。【0021】液体と反応する成分として粉末を用いる例としては、液体として水を使用し、粉末として窒化アルミニウムを使用する場合がある。この反応では、反応ガスとしてアンモニアが発生する。

【0022】そこで、先ず、水分散系で分散剤および添加剤を加えて混合した後、その水分量を減じて水をカプセル化しておく。次いで、接合しようとする金属間に薄く塗布し、その水分量を減少させていくと、臨界点以下で発熱反応が激しく開始され、セラミックス粉末の焼結や融着、さらには接合しようとする金属間の局部的な溶融が発生する。その結果、接合しようとする金属相互に拡散が生じ、接合部が複合材化することになる。

【0023】ところで、このような接合に際して、複合材化されたものの方が結合強度が高くなるが、介在物としての挙動を抑える場合には、金属粉を用いることがよく、さらに金属を選択してセラミックス化しないように制御することもできる。この種の金属粉としては、希土類元素系のセリウム(Ce)、イットリウム(Y)、ネオジム(Nd)、サマリウム(Sm)、ジスプロシウム(Dy)およびランタン(La)等やアルミニウム(A1)、マグネシウム(Mg)およびリチウム(Li)等が該当する。一方、セラミックス化しない場合としては、クロム(Cr)、モリブデン(Mo)、タングステン(W)、タンタル(Ta)、ニッケル(Ni)、コバルト(Co)およびチタン(Ti)等を金属に付加すると同時に、反応する相手液体側として、還元性のあるものを選択する必要がある。

[0024]

【発明の実施の形態】本発明の第1の形態に係る常温接合方法について、以下に説明する。この第1の実施形態では、金属とセラミックスとを接合する方法を、図1を参照しながら以下に説明する。

【0025】先ず、セラミックスとして、酸化イットリウムおよび酸化カルシウムを 3%含む窒化アルミニウム 焼結体が用意された(ステップST1)。一方、接合用 金属としては、厚さが 12μ mの純銅製の薄膜が設定された。

【0026】次いで、窒化アルミニウム微粉末に対し金属アルミニウム微粉末およびニッケル微粉末をそれぞれ重量比で96.5:3:0.5に設定された粉末に、分散剤としてアルギン酸アンモニウムおよびカルバミン酸エステルの溶液を8wt%、実質的には0.4wt%だけ添加し、さらにアクリル樹脂エマルジョンを1wt%だけ添加して混合した。

【0027】さらに、上記の混合された接合剤は、水分を12wt%に調製された後、窒化アルミニウム板の銅箔を積載する側に薄く塗布された。その上に銅箔が載置されるとともに、重りが配置された(ステップST2)。窒化アルミニウム板は、2×2×0.0025インチの板状であり、銅箔は、同一の大きさを有するとともに、重りは1kgに設定された。この積層物を室温(100℃以下)中に放置したところ(ステップST3)、30分間経過した後に発熱が始まり、直ちに発熱反応が起こった。そして、1時間経過後に重りを取り除いて観察したところ、良好な接合状態が得られた。

【0028】そこで、接合面を切断し、鏡面研磨後に実体顕微鏡観察および電子顕微鏡観察を行ったところ、接合面が略均等に、しかも電子顕微鏡による線分析では、アルミニウム成分の銅への拡散および銅成分の窒化アルミニウムへの拡散が生じており、強固な接合状態が得られたことが実証された。

【0029】しかも、第1の実施形態では、金属とセラ

ミックスの接合工程が、実質的に3工程でよい(図1(A)参照)。通常、この種の接合工程では、図2に示すように、銅と窒素に共晶域がないため、大気中で熱処理を施して窒化アルミニウム焼結体の表面を酸化する工程が必要であった(ステップST1aおよびステップST2a)。

【0030】次に、窒化アルミニウム焼結体に銅の薄膜を接着し、あるいはペーストを印刷し(ステップST3a)、銅と酸素の共晶点乃至はその近傍まで加熱することにより接合した(ステップST4a)。これにより、第1の実施形態では、従来の酸化工程と加熱工程とが不要になり、接合工程全体の簡素化および迅速化が遂行されるという効果が得られた。

【0031】次に、第2の実施形態として、金属と金属の接合の中、アルミニウム合金とアルミニウム合金の接合方法について以下に説明する。

【0032】図3に示すように、例えば、A1P5182(JIS)のアルミニウム板10a、10bが用意された。このアルミニウム板10a、10bは、板厚が2.0mmであり、 40×100 mmに切断されてそれぞれの一部分を重畳させた状態で、反応金属と液体とを含む接合剤12が配置された。この接合剤12は、アルミニウム板10a、10bの端部からそれぞれ20~30mm離間した位置で接合幅が10mmに設定された。接合剤12としては、下記の表1に示した4種類のものが採用され、それぞれの接合剤12により接合されたアルミニウム板10a、10bの接合強度として引張り剪断強度を求めた。

[0033]

【表1】

表1 AIの常温接合剤と引張り剪断強度

反応金属	液体	引張り剪断強度 (MPa)		
L i A & H 4	エタノール	200~260		
LiBH, +Cr	エチルアミン	180~230		
Ce+Sm+Co	エタノール+水	180~210		
C r + L a + H f + N i + D y	メチルアミン+エタノール+水	180~240		

【0034】ここで、比較例として、従来のスポット溶接法を用いて同一の素材による接合作業を行った。接合条件しては、電極径が19mm、先端Rが150の電極で、加圧力として600kgfの荷重を印加しながら、35000Aの大電流を12~16サイクル流して溶接を行った。このスポット溶接では、生成されるナゲット(接合部)に水素のブローホール等による欠陥が発生したり、溶接部の割れが生じた。また、電流の印加による

発熱が生じ、軟化による大きな打痕が惹起されて外観品質が低下した。その際、スポット溶接による接合の引張り剪断強度は、 $800\sim1000$ kgf $/\phi9\sim\phi11$ mmで、 ~160 MPa程度であった。

【0035】これにより、第2の実施形態の接合強度が、従来のスポット溶接によるものに比べて相当に高い値となった。しかも、スポット溶接のように、大電流を発生させる必要がなく、設備費を大幅に削減することが

できるという利点も得られた。

【0036】本発明の第3の実施形態として、鉄系材料の接合について以下に説明する。ここで、相互に反応する液体および成分は、第2の実施形態に係るアルミニウム合金とアルミニウム合金との接合に使用されたものと同様のものを使用可能であるが、アルミニウムやリチウム等は、接合部の特性を劣化させるおそれがあり、使用しない。

【0037】液体と反応する成分としては、ランタン(La)およびセリウム(Ce)を含む希土類元素、マンガン(Mn)、クロム(Cr)、バナジウム(V)、タングステン(W)、モリブデン(Mo)、イットリウム (Y)、タンタル(Ta)およびニオブ(Nb)等が用いられ、さらに副次的に鉄系金属、チタン(Ti)、ジルコニウム(Zr)、ハフニウム(Hf)および炭素(C)等が用いられる。

【0038】液体は、前述したアルコール類、アミン類 および水等であり、さらにエステルやアミド、蟻酸、酪 酸または安息香酸等の有機酸を用いることにより、反応 の速さや発熱量の調製、さらに酸化の促進や抑制を制御 してもよい。

【0039】そこで、鉄系材料として、熱処理済みのS CM430をJIS10号試験片に加工し、その一部を中央部で切断した。次いで、これらの試験片を、比較例であるろう付けおよび拡散ろう付けと、第3の実施形態であるA、BおよびCとを用いて接合した。ろう材としては、ニッケルろう(BNi-1)を用いた。拡散ろう付けでは、接合後に熱処理を行った。また、第3の実施形態のA、BおよびCは、下記の表2に示す液体および成分を用いた。

【0040】 【表2】

表 2

	反応させる液体	液体と反応する物質		
Α	メチルアルコール+水	La+Cr+Mo		
В	酢酸+水+NH,OH	Sm+Mn+V		
С	エタノールアミン	Ce+Dy+Cr+Ni		

【0041】これらの接合後に引張り試験を行ったところ、下記の表3に示すような結果が得られた。

【0042】 【表3】

表3

	比較例 実施例				
接合法	ろう付け	拡散ろう付け	A	В	С
引張り剪断強度 (MPa)	8 0	290	780	980	1100

【0043】ろう付けでは、引張り剪断強度が~100 MPa程度であり、拡散ろう付けによる引張り剪断強度でも、~300MPa程度の値であった。これらに対して、第3の実施形態に係るA、BおよびCを用いた場合では、拡散ろう付けによるものに比べて2倍以上の接合強度が得られた。

[0044]

【発明の効果】以上のように、本発明に係る部材の常温 接合方法では、接合処理が常温乃至その近傍で行われる ため、高い接合強度を有するとともに、熱的影響がな く、例えば、歪み等の発生を有効に阻止することができ る。しかも、互いに反応する液体および成分を選択する ことにより、金属同士の接合、あるいは金属とセラミッ クスとの接合の際においても、前記金属や前記セラミッ クスを殆ど加熱する必要がなく、相互拡散によって非常 に高い強度と接合信頼性とを得ることができる。しか も、特別な加熱処理装置が不要となり、設備費を低減化 することが可能になる。

【図面の簡単な説明】

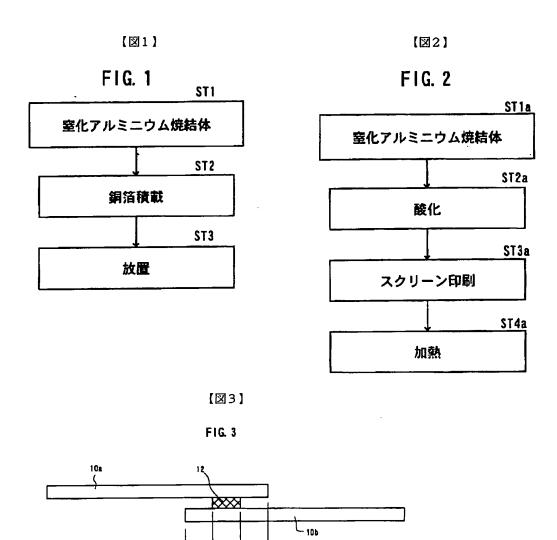
【図1】本発明の第1の実施形態に係る常温接合方法の 工程説明図である。

【図2】前記第1の実施形態に対応する従来の製造工程の説明図である。

【図3】本発明の第2の実施形態に係る常温接合方法に 使用される部材および接合剤の説明図である。

【符号の説明】

10a、10b…アルミニウム板 12…接合剤



20~30cm

20~90mm